

FACULTATEA DE FIZICĂ, UNIVERSITATEA BABEȘ-BOLYAI
CLUJ-NAPOCA, ROMÂNIA

REZUMATUL TEZEI DE DOCTORAT

EFECTE DE INTERFERENȚĂ ÎN IONIZAREA
MOLECULEI DE HIDROGEN

PÓRA MELINDA-KATALIN

CONDUCĂTOR ȘTIINȚIFIC: PROF. DR. NAGY LADISLAU

IANUARIE 2010

Conținutul tezei de doctorat

Introducere	1
1 Introducere teoretică	6
1.1 Definiția secțiunii eficace	6
1.1.1 Definiția clasică	6
1.1.2 Definiția cuantică	9
1.2 Teoria perturbațiilor dependente de timp	10
1.3 Tranziții induse prin impact cu particule încărcate	13
1.3.1 Tranziții unielectronice	13
1.3.2 Aproximația semiclastică (SCA)	14
1.4 Tranziții produse de radiația electromagnetică	17
1.4.1 Regula de aur a lui Fermi	17
1.4.2 Interacțiunea dintre radiația electromagnetică și particulele încărcate	20
1.4.3 Aproximația dipolară	26

2	Ionizarea moleculei de hidrogen prin impact cu ioni rapizi	29
2.1	Modele teoretice pentru ionizarea moleculei de hidrogen	29
2.1.1	Calculi analitice	30
2.1.2	Calculi numerice	36
2.2	Rezultate și discuții	41
2.2.1	Calculi analitice	42
2.2.2	Calculi numerice	63
2.3	Concluzii	69
3	Fotoionizarea moleculei de hidrogen	72
3.1	Fotoionizarea în aproximația undelor plane	72
3.1.1	Calculile în etalonul de viteză	73
3.1.2	Calculile în etalonul de lungime	76
3.2	Rezultate și discuții	79
3.3	Concluzii	88
4	Concluzii	90
	Bibliografie	93

Cuvinte cheie

- secțiune eficace diferențială de ionizare
- ionizarea moleculelor
- molecula de hidrogen
- aproximația semiclassicală
- efecte de interferență

Introducere

Luând în considerare caracterul ondulatoriu al electronului și caracterul bi-centric al moleculei de hidrogen, nucleele moleculei pot fi considerate centre de emisie pentru unda asociată electronului ejectat în urma ionizării, analog cu experimentul Young pentru lumină. În cazul moleculei de hidrogen sursa de emisie coerentă este reprezentată de cele două nuclee ale moleculei, observând astfel oscilații în spectrul electronului emis.

În ultimii ani au fost efectuate multe experimente și studii teoretice asupra ionizării moleculei de hidrogen și efectul de interferență observat în secțiunea eficace diferențială de ionizare. Raportul dintre secțiunile eficace ale moleculei de hidrogen și a doi atomi de hidrogen, în funcție de unghiul de emisie și viteza electronului prezintă oscilații. Amplitudinea de tranziție poate fi descrisă ca superpoziția coerentă a amplitudinilor mono-centrice, de unde rezultă oscilațiile de interferență în secțiunea eficace. Aceste oscilații sunt prezente și în urma medierii după toate orientările axei moleculare [1, 2]. Efectul de interferență pentru tranfer de sarcină [1, 3, 4] și fotoionizare [2, 5] a fost analizat de mai multă vreme.

Pentru ionizarea moleculei de hidrogen cu particule încărcate există mai multe rezultate experimentale. Experimentele au fost realizate folosind proiectili cu energii mari Kr^{34+} [6], Kr^{33+} [7], proton [8, 9], C^{6+} [10–13] și F^{9+} [14]. Fenomenul a fost studiat și teoretic [15–26].

Pentru a înțelege și a explica fenomenul de interferență observat în experimente am dezvoltat o teorie analitică simplă. Calculele noastre analitice

[17] reproduc efectele de interferență și valorile rezultatelor obținute pentru secțiunea eficace diferențială sunt apropiate de cele experimentale. Pentru a obține o mai bună concordanță a secțiunii eficace cu cele experimentale am elaborat un alt model, cel numeric.

Comun în cele două modele este că proiectilul are energie mare, din această cauză presupunem că are o traiectorie liniară, iar particulele din molecula țintă sunt descrise prin intermediul mecanicii cuantice. Această aproximație se numește aproximația semiclassicală. Interacțiunea dintre proiectil și particulele din țintă este considerată perturbativă, deoarece influențează starea cuantică a țintei.

În cazul fotoionizării țintei moleculare bi-centrice posibilitatea efectului de interferență a fost prezisă pentru prima oară de Cohen și Fano [5]. Acest fenomen a fost analizat mai profund de Walter și Briggs [2], inclusiv pentru fotoionizarea dublă.

Sunt multe date experimentale [27–30] și descrieri teoretice [31–36] pentru fotoionizarea moleculei de hidrogen, dar studiile care analizează efectele de interferență sunt relativ puține.

Fotoionizarea poate fi tratată în diferite etaloane (etalioane de lungime, de viteză sau de accelerație a operatorului dipolar). Dacă funcțiile de undă a stărilor inițiale și finale sunt exacte, rezultatele sunt independente de etalon. În cazul atomilor sau moleculelor cu mai mulți electroni starea electronică nu poate fi descrisă exact, și rezultatele obținute sunt dependente de etalon. Acest fapt se observă și în calculele elaborate pentru heliu [40] sau molecula de hidrogen [33]. Dar există aproximații, cum ar fi aproximația RPA [33, 36] care pot duce la rezultate independente de etalonul de calcul.

2. Ionizarea moleculei de hidrogen prin impact cu ioni rapizi

2.1 Modele teoretice pentru ionizarea moleculei de hidrogen

Am elaborat diferite modele pentru ionizarea moleculei de hidrogen. Particularitatea moleculei este că are două nuclee identice, care pot fi considerate centre de împrăștiere pentru electronul emis. Interacțiunea proiectilului cu molecula este o perturbație dependentă de timp. În aproximația semiclassicală mișcarea proiectilului este tratat clasic, traiectoria este lineară.

Pentru ionizarea moleculei de hidrogen cu ioni rapizi am elaborat două modele. În primul model starea inițială este descrisă printr-o combinație lineară de doi orbitali atomici $1s$, iar starea finală este aproximată cu unde plane. Folosind aceste funcții de undă, calculele pot fi efectuate analitic. În al doilea model starea finală este descrisă de o funcție de undă mai precisă și calculele se pot efectua numeric.

2.1.1 Calcule analitice

Teoria este asemănătoare cu modelul țintei atomice a lui Hansen și Kocbach [42], cu modificări pentru ținte moleculare. Amplitudinea de ordinul întâi se

poate calcula cunoscând funcția de undă inițială și finală a electronului activ și potențialul în care se mișcă.

Starea inițială a electronului din molecula de hidrogen este descrisă prin combinația lineară a doi orbitali atomici de tip $1s$, centrați pe nucleele țintei, iar funcția de undă finală a electronilor cu impulsul \mathbf{k} este aproximată cu unde plane. Amplitudinea a fost calculată folosind integrala Bethe pentru descrierea potențialului. În calcule am mai folosit aproximația "peaking", adică am luat în considerare numai electroni cu viteze mari.

Probabilitatea de tranziție pentru parametrul de impact b și orientarea axei moleculare $\hat{\mathbf{D}}$ într-o formulă simplă este

$$w(b, \hat{\mathbf{D}}) = |a(b, \hat{\mathbf{D}})|^2 \quad (2.1)$$

$$= c(b, \hat{\mathbf{D}}) + g(b, \hat{\mathbf{D}}) \cos [(k_{\parallel} - q)D \cos \theta_D], \quad (2.2)$$

unde k_{\parallel} este componenta paralelă impulsului final \mathbf{k} , în direcția proiectilului, q este transferul minim de impuls.

Pentru a compara cu datele experimentale, probabilitatea trebuie mediată după toate orientările axei moleculare. Integrând probabilitatea astfel obținută după parametrul de impact obținem secțiunea eficace diferențială

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_k dk} = 2\pi \int b w(b) db. \quad (2.3)$$

Integrala (2.3) trebuie calculată numeric, dar efectul de interferență poate fi studiat, observând factorul oscilator în (2.2). Integrând numai acest factor după unghiurile axei moleculare, obținem:

$$\frac{1}{2} \int_0^{\pi} \cos [(q - k_{\parallel})D \cos \theta_D] \sin \theta_D d\theta_D = \frac{\sin[(k_{\parallel} - q)D]}{(k_{\parallel} - q)D}. \quad (2.4)$$

De aici, probabilitatea de tranziție poate fi scrisă ca

$$w(b) = c(b) + g(b) \frac{\sin[(k_{\parallel} - q)D]}{(k_{\parallel} - q)D}, \quad (2.5)$$

iar secțiunea eficace corespunzătoare (2.3) va fi

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_k dk} = C + G \frac{\sin[(k_{\parallel} - q)D]}{(k_{\parallel} - q)D}. \quad (2.6)$$

Acest rezultat poate fi comparat cu cel al lui Stolterfoht *et al.* [6],

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_k dk} = C + G \frac{\sin kD}{kD}. \quad (2.7)$$

Doarece în general $q \ll k$, formula noastră poate fi aproximat astfel:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_k dk} = C + G \frac{\sin k_{\parallel} D}{k_{\parallel} D}. \quad (2.8)$$

2.1.2 Calcule numerice

Teoria se bazează pe modelul prezentat în [41]. Starea inițială al moleculei H_2 este descrisă de funcția de undă moleculară de tip Heitler–London cu axă moleculară fixă D . Starea finală este produsul funcției de undă a stării legate a ionului rezidual și a funcției de undă Coulombiană a electronului. Întrucât procesul de ionizare este mult mai rapid decât mișcarea nucleului, starea finală a ionului rezidual este aproximată de funcția de undă a ionului molecular H_2^+ având axa moleculară D a stării inițiale al moleculei H_2 . Interacțiunea dintre electronul activ și proiectil este de tip Coulombian. Pași importanți în calculele efectuate sunt: dezvoltarea în serie după unde parțiale a funcției de undă a electronului și a interacțiunii Coulombiene, și dezvoltarea în serii Legendre a funcției de undă a țintei. Exprimând polinoamele Legendre ca produsul armonicelor sferice, dependența de orientarea axei moleculare poate fi separată.

Probabilitatea de tranziție se obține calculând amplitudinea de tranziție

folosind (2.1) și (2.3). Folosind notația

$$\Gamma_{l_f l_c l_i}(k, R, D) = \int_0^{\infty} dr_1 r_1^2 R_{l_f}(kr_1) \frac{r_1^{l_c}}{r_1^{l_c+1}} c_{l_i}(r_1, D) \quad (2.9)$$

$$G_{l_f l_c l_i}^{m_c}(k, b, D) = \int_{-\infty}^{+\infty} dz e^{i \frac{\Delta E}{v} z} Y_{l_c m_c}(\hat{R}) e^{-im_c \varphi_b} \Gamma_{l_f l_c l_i}(k, R, D) \quad (2.10)$$

secțiunea eficace diferențială devine:

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega_k dk} &= \int_0^{\infty} |a(\mathbf{b}, \mathbf{k}, \mathbf{D})|^2 b db = 8\pi^3 \left(\frac{Z_p N_i}{v_p N_f} \right)^2 \\ &\times \sum_{l_f l_c l_i l'_f l'_c} \frac{i^{l'_f - l_f} e^{i(\sigma_{l'_f} - \sigma_{l_f})}}{(2l_i + 1) \sqrt{(2l_f + 1)(2l'_f + 1)(2l_c + 1)(2l'_c + 1)}} \\ &\times (l_c 0 l_i 0 | l_f 0) (l'_c 0 l_i 0 | l'_f 0) \sum_{m_f m_c m_i} (l_c m_c l_i m_i | l_f m_f) (l'_c m_c l_i m_i | l'_f m_f) \\ &\times Y_{l_f m_f}^*(\hat{k}) Y_{l'_f m_f}(\hat{k}) \int_0^{\infty} G_{l_f l_c l_i}^{m_c}(k, b, D) G_{l'_f l'_c l_i}^{m_c*}(k, b, D) b db, \quad (2.11) \end{aligned}$$

unde $(lm'l'|LM)$ denotă coeficienții Clebsch-Gordan.

Prin intermediul formulelor (2.6) și (2.11) putem calcula secțiunea eficace, putem studia efectul de interferență și compara rezultatele noastre cu rezultatele experimentale.

2.2 Rezultate și discuții

Am studiat ionizarea moleculelor H_2 și H_2^+ . În calcule, pentru H_2 , sarcina efectivă este $\alpha=1.165$, distanța internucleară $D=1.42$ (în unități atomice) și energia de ionizare este 0.567 Hartree. Pentru ionul molecular H_2^+ $D=2.00$, $\alpha=1.00$ și energia de ionizare este 1.1 Hartree. Am studiat secțiunea eficace diferențială de ionizare pentru diferiți proiectili, diferite unghiuri de emisie

a electronului și efectele de interferență. Pentru a evidenția acest efect am reprezentat raportul secțiunilor eficace al moleculei de hidrogen și doi atomi de hidrogen în funcție de viteza electronului emis pentru diferite unghiuri de emisie. Am mai studiat dependența acestora de orientarea axei moleculare.

2.2.1 Calcule analitice

Teoria și rezultatele au fost publicate în *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* [17]. Importanța acestui model este că prezice dependența unghiulară a oscilațiilor de interferență, care ulterior a fost dovedită și experimental.

Secțiunea eficace dublu diferențială de ionizare

Ca un prim pas am folosit proiectili Kr^{34+} , Kr^{33+} , H^+ de mare energie, acestea fiind utilizate și în experimente.

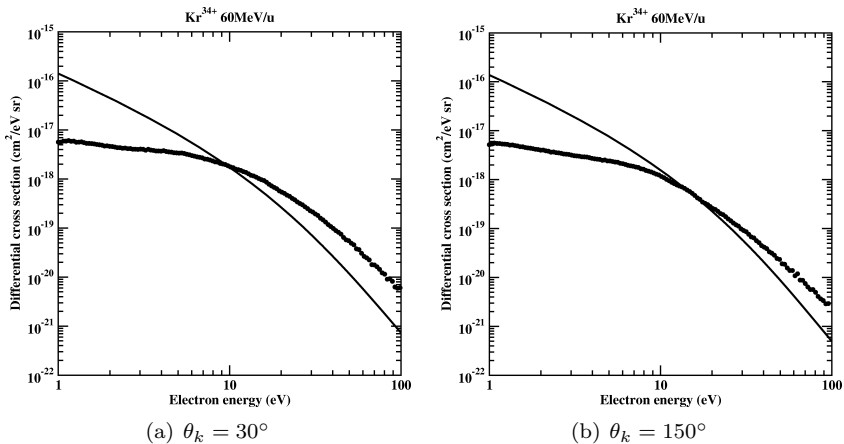


Figura 2.1: Secțiunea eficace dublu diferențială pentru ionizarea moleculei H_2 prin impact de 60 MeV/u Kr^{34+} ion pentru unghiurile de emisie de 30° (a) și 150° (b) în funcție de energia electronului. Rezultatele calculate (linie continuă) sunt comparate cu cele experimentale [6] (cercuri).

Secțiunea eficace dublu diferențială al moleculei H_2 prin impact cu proiectili

Kr^{34+} de 60 MeV/u pentru unghiurile de emisie de 30° și 150° , în funcție de energia electronului, calculată din (2.2)–(2.3) sunt reprezentate în Fig. 2.1 alături de rezultatele experimentale [6].

Din cauza stării finale simplificate și a aproximației ”peaking”, la energii mici ale electronilor nu ne așteptăm la rezultate bune. Unele discrepanțe se pot observa și la energii mari. Totuși modelul este folositor pentru înțelegerea efectelor de interferență.

Efectele de interferență

Pentru a pune în evidență efectul de interferență, am calculat raporturile secțiunii eficace pentru molecula de hidrogen și doi atomi de hidrogen. Secțiunile eficace pentru ținte atomice sunt calculate pentru aceleași potențiali de ionizare și sarcini efective ca și pentru țintele moleculare.

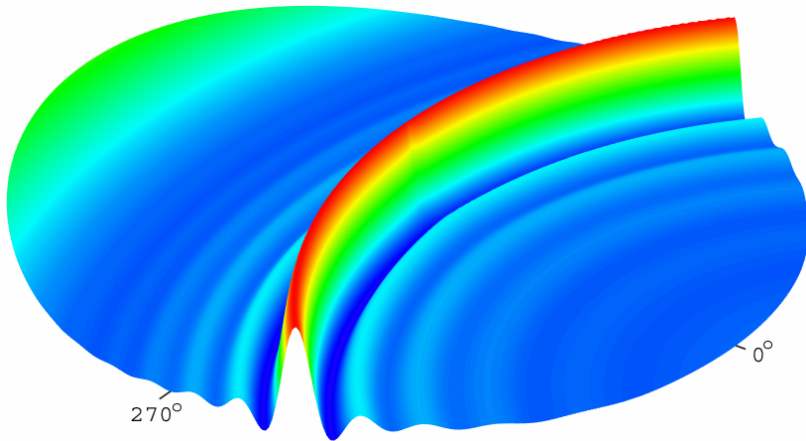


Figura 2.2: Raportul secțiunilor eficace pentru ionizarea prin impact cu ioni Kr^{34+} de 60 MeV/u în funcție de viteza și unghiul de emisie a electronului. Viteza este coordonata radială iar valoarea maximă este de 35 u.a.

Pentru a analiza influența unghiului de emisie a electronului asupra perioadei și fazei oscilațiilor de interferență am efectuat calculele pentru viteza

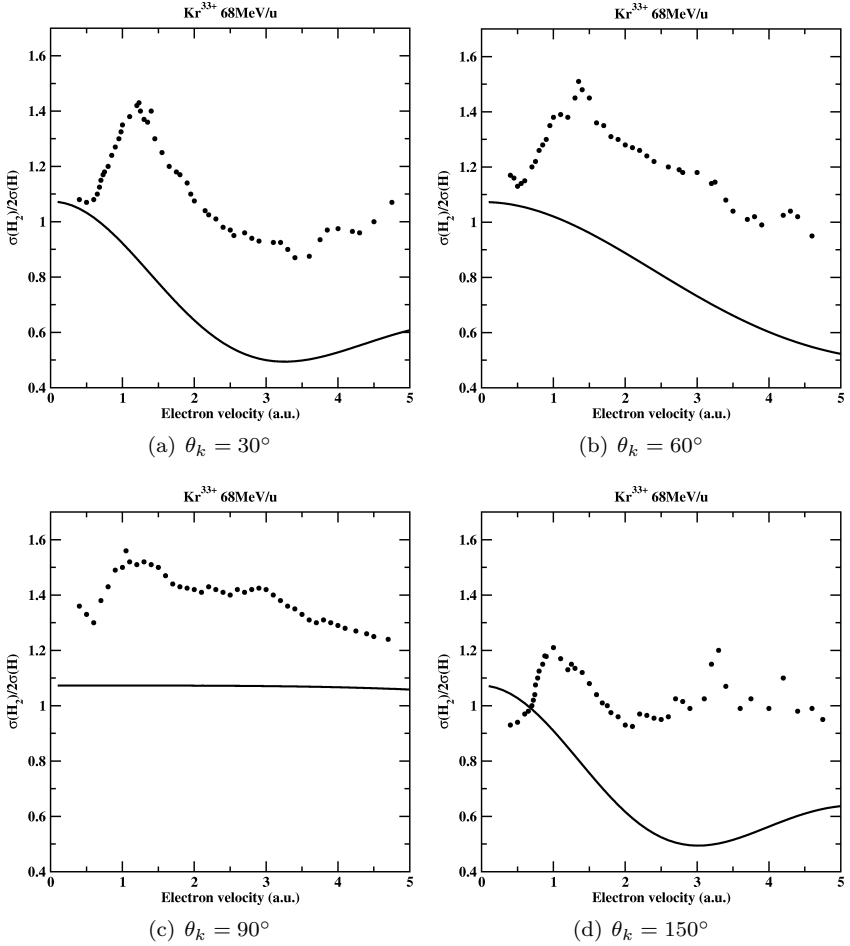


Figura 2.3: Raportul secțiunilor eficace pentru unghiurile de emisie 30° (a), 60° (b), 90° (c) și 150° (d) (linie continuă) comparată cu datele experimentale [7] (cercuri).

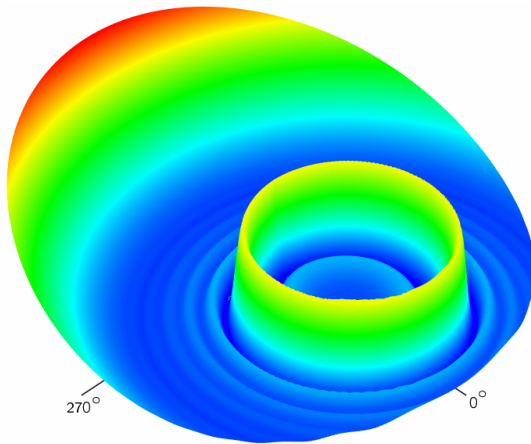


Figura 2.4: Raportul secțiunilor eficace pentru ionizarea prin impact cu protoni 5 MeV în funcție de viteza și unghiul de emisie a electronului. Viteza este coordonata radială iar valoarea maximă este 35 u.a.

electronului până la 35 u.a. Rezultatele sunt prezentate în Fig. 2.2. Pentru viteze mari raportul oscilează cu perioadă variabilă, pentru că transferul de impuls $q = (E_I + k^2/2)/v_p$ devine comparabil cu k cu creșterea acestuia. Așa cum ne arată și formula (2.6), oscilațiile pentru valori mai mici ale k la 90° sunt suprimate, perioada oscilațiilor variază cu unghiul de emisie $2\pi/D \cos \theta_k$.

Efectul de interferență a fost studiat experimental [7] și pentru ionizarea moleculei de hidrogen prin impact cu Kr^{33+} . Am efectuat calculele folosind aceeași energie și sarcină pentru proiectil ca și în experiment. Rezultatele sunt prezentate în Fig. 2.3 împreună cu cele experimentale [7], pentru diferite unghiuri de emisie. Perioada și faza oscilațiilor sunt similare cu cele observate în experimente. Acest acord este obținut pentru valori mai mari ale vitezei electronilor ($v > 1.5$ u.a.).

Raportul secțiunilor eficace în funcție de viteza și unghiul de emisie a electronului sunt prezentate în Fig. 2.4. Observăm un maxim accentuat pentru “binary peak”. Pentru proiectilul cu energia 5 MeV locul maximei pentru emisia paralelă cu traiectoria proiectilului este la $k \approx 28.24$ u.a. și se de-

plasează spre viteze mai mici cu creșterea unghiului spre direcția perpendiculară. În Fig. 2.2 nu se observă aceste maxime în direcția paralelă cu traiectoria proiectilului deoarece apare la $k \approx 98$ u.a.

Dependența de orientarea axei moleculare

Articolul lui Laurent *et al.* [16] prezintă calcule teoretice CDW-EIS și studiază dependența secțiunii eficace de orientarea axei moleculare. Calculele au fost efectuate pentru proiectili C^{6+} de 13.7 MeV/u și pentru energii diferite ale electronului emis (10 eV, 61.3 eV, 100 eV). Orientarea axei este paralelă sau perpendiculară pe direcția proiectilului. Pentru a compara rezultatele noastre cu cele publicate în articol, am efectuat calculele pentru aceleași energii ale electronului și a proiectilului.

Pentru investigarea dependenței de orientarea axei moleculare în calcule am omis integrarea după orientarea moleculei. Calculăm secțiunea eficace introducând (2.2) direct în (2.3), astfel secțiunea eficace va depinde de orientarea moleculei. Rezultatele au fost publicate în *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* [25].

În Fig. 2.5 sunt prezentate rezultatele noastre împreună cu cele ale lui Laurent *et al.* [16] pentru orientarea paralelă respectiv perpendiculară a axei moleculare cu traiectoria proiectilului, pentru o energie a electronului de 100 eV. Se poate vedea, că orientarea moleculei influențează secțiunea eficace de ionizare. Rezultatele noastre sunt în bună concordanță cu cele ale lui Laurent *et al.* [16]. Putem afirma că modelul nostru simplu descrie bine și dependența de orientarea axei moleculare.

Să ne concentrăm asupra influenței orientării axei moleculare pe oscilațiile de interferență. În calcule, am considerat electroni cu viteza de până la 60 de u.a.

Fig. 2.6 prezintă secțiunea eficace mediată după unghiurile φ_D pentru diferite θ_D orientări ale moleculei și pentru diferite unghiuri de emisie. Se poate observa, că oscilațiile sunt cele mai pronunțate pentru orientarea paralelă al moleculei, în acord cu observațiile lui Sisourat *et al.* [43]. Interferența este

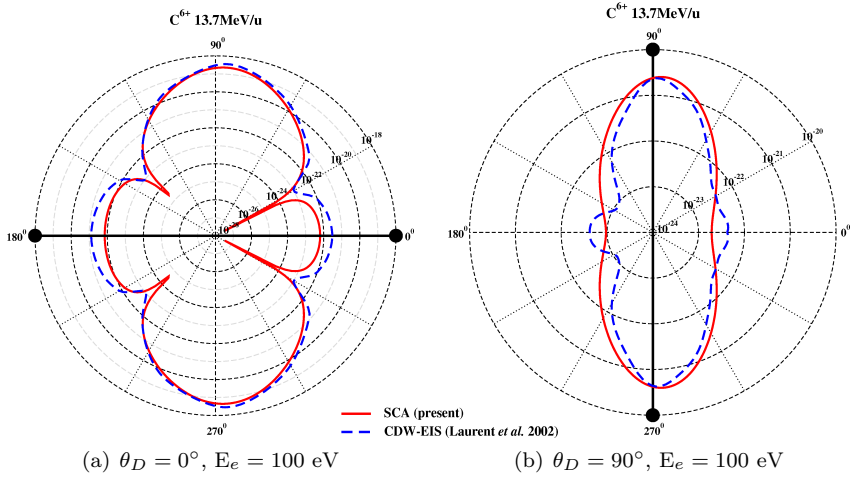


Figura 2.5: Secțiunea eficace dublu diferențială calculată pentru ionizarea moleculei de hidrogen de 13.7 MeV/u C^{6+} ion în funcție de unghiul de emisie împreună cu rezultatele CDW-EIS [16]. Axa moleculară este paralelă (a) respectiv perpendiculară (b) pe traiectoria proiectilului. Energia electronului este de 100 eV.

sistematic constructivă pentru $k_{\parallel} = q$, adică dacă viteza electronului emis este $k \approx 2v \cos \theta_k$ ($k \approx 47$ u.a. pentru $\theta_k = 0^\circ$, $k \approx 40$ u.a. pentru $\theta_k = 30^\circ$ și $k \approx 23.5$ u.a. pentru $\theta_k = 60^\circ$). În unele cazuri, când molecula disociază, unghiul θ_D poate fi detectat experimental. În acest cazar fi posibilă compararea cu rezultatele noastre.

2.2.2 Calcule numerice

Am putut vedea că calculele analitice reproduc efectele de interferență în ionizarea moleculei de hidrogen, dar secțiunea eficace diferențială diferă de valorile experimentale. Am elaborat un model nou pentru îmbunătățirea calculelor. Pentru a putea compara rezultatele obținute, am efectuat calculele pentru aceleași proiectili ca și în cazul calculelor analitice, pornind de la (2.11).

În dezvoltarea funcției de undă a electronului în unde parțiale, valoarea maximă pentru l_f variază în funcție de viteza electronilor emiși, are valori

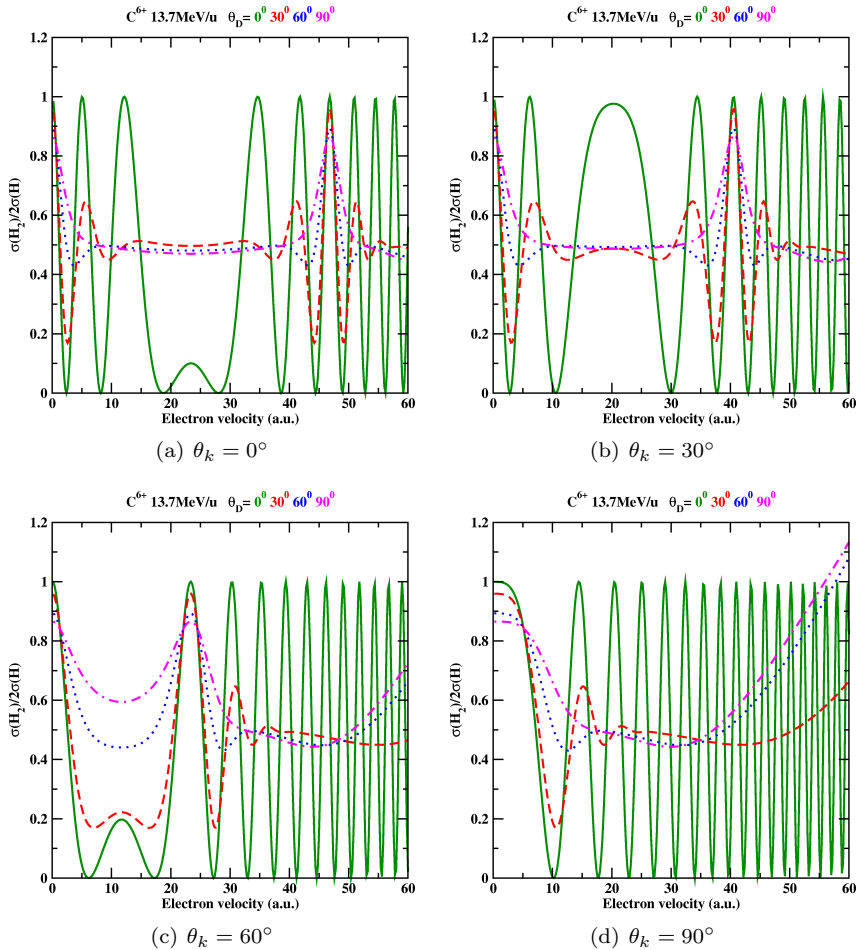


Figura 2.6: Raportul $\sigma(H_2)/2\sigma(H)$ în funcția de viteza electronului pentru diferite unghiuri θ_D și 0° (a), 30° (b), 60° (c) respectiv 90° (d) unghiuri de emisie a electronului.

începând de la 6 pentru energii mici și crește până la 30 pentru energii mari. Rezultatele acestui model au fost publicate în *Technical Review (Physics)* [23].

Secțiunea eficace dublu diferențială

Fig. 2.7 prezintă secțiunea eficace diferențială pentru ionizarea moleculei de hidrogen prin impact cu $60 \text{ MeV/u Kr}^{34+}$ împreună cu datele experimentale [6], pentru unghiurile de emisie de 30° (a) și 150° (b). Putem observa, că acest model dă rezultate mult mai bune, mai ales la energiile mici ale electronului.

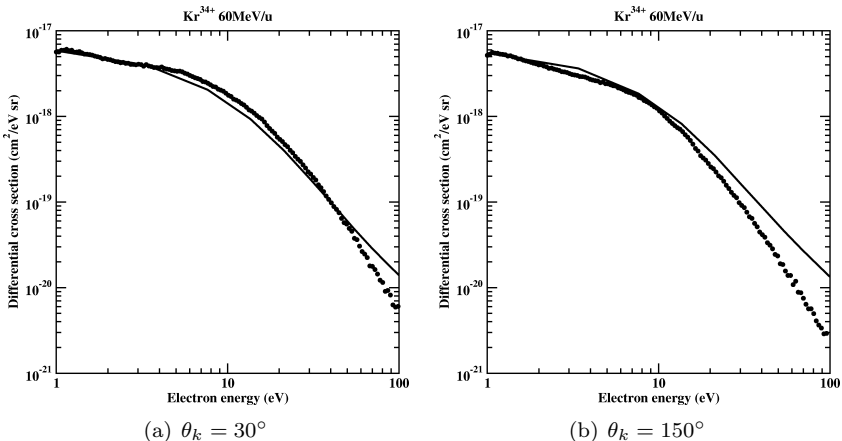


Figura 2.7: Secțiunea eficace diferențială în funcția energiei electronilor în cazul ionizării moleculei de hidrogen cu $60 \text{ MeV/u Kr}^{34+}$ pentru unghiurile de emisie de 30° (a) și 150° (b). Rezultatele noastre (linie continuă) sunt comparate cu cele experimentale [6] (cercuri).

Diferența la energii mari poate fi explicată prin faptul că funcția de undă finală este mono-centrică. Am studiat și efectele de interferență cu acest model.

Efectele de interferență

Pentru evidențierea efectului de interferență am reprezentat raportul secțiunilor eficace $\sigma(H_2)/2\sigma(H)$ în funcție de viteza electronului pentru diferite unghiuri de emisie și pentru diferiți proiectili.

Fig. 2.8 prezintă raportul secțiunilor eficace în funcție de viteza electronului. Proiectilul este $68 \text{ MeV/u Kr}^{33+}$, unghiurile de emisie de 30° și 90° . Și în acest caz se pot observa oscilații de interferență, dar au un aspect crescător

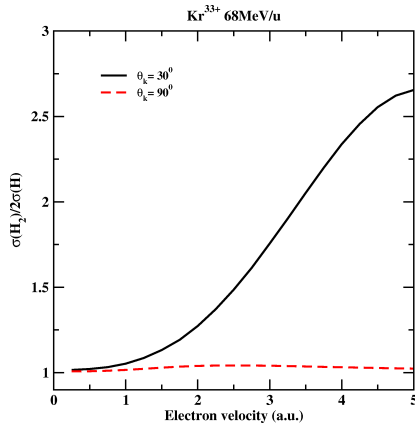


Figura 2.8: Rezultatele teoretice pentru raportul secțiunilor eficace în funcție de viteza electronilor pentru diferite unghiuri de emisie.

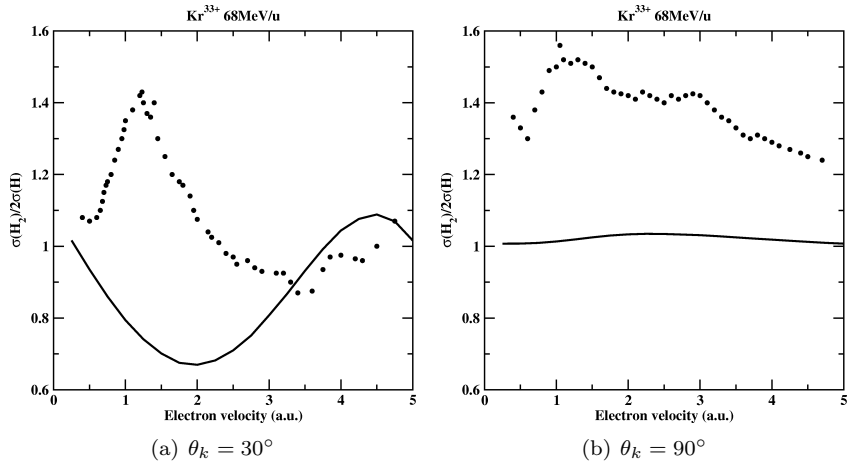


Figura 2.9: Rezultatele teoretice din Fig. 2.8 corectate (linie continuă) împreună cu cele experimentale [7] (cercuri).

cu creșterea vitezei electronilor. Am corectat acest aspect crescător și am comparat rezultatele noastre ce cele experimentale [7] (Fig. 2.9). În acest

caz perioada și faza oscilațiilor diferă de cele experimentale, fapt explicat prin caracterul mono-centric a funcției de undă finală al electronului.

2.3 Concluzii

Prin intermediul celor două modele prezentate am investigat nu numai secțiunea eficace dar și efectele de interferență datorate caracterului bi-centric al moleculei de hidrogen. Am studiat și dependența acestora de orientarea axei moleculare.

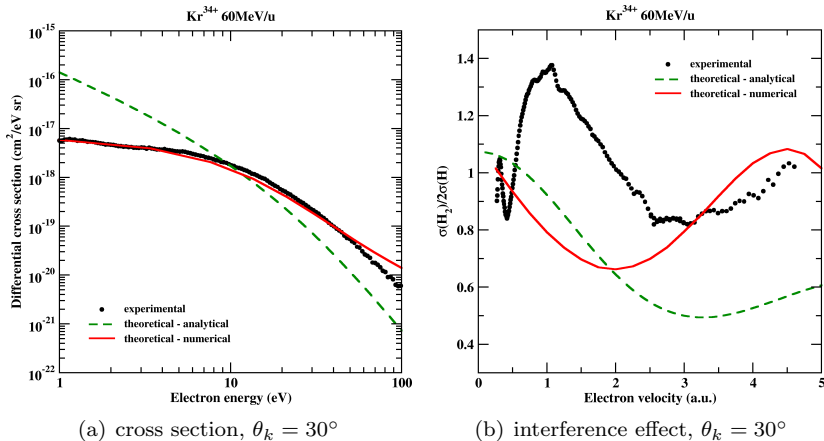


Figura 2.10: Secțiunea eficace diferențială în funcția energiei electronului (a) și raportul $\sigma(H_2)/2\sigma(H)$ în funcție de viteza electronilor (b) pentru ionizarea moleculei H_2 prin impact cu $60 \text{ MeV/u Kr}^{34+}$ la unghiul de emisie de 30° a electronului. Rezultatele noastre teoretice sunt comparate cu cele experimentale [6].

Importanța primului model este că prezice dependența unghiulară a perioadei oscilațiilor, ulterior dovedit și experimental. Modelul dă o descriere bună a efectelor de interferență și rezultatele sunt în bună concordanță cu datele experimentale. Pentru secțiunea eficace, rezultatele diferă de cele experimentale. Am studiat și dependența secțiunii eficace și a oscilațiilor de interferență de orientarea axei moleculare (paralelă și perpendiculară pe traiec-

toria proiectilului). Rezultatele obținute dovedesc că modelul este potrivit și pentru descrierea dependenței de orientarea axei moleculare. Deficiența modelului este neconcordanța cu secțiunea eficace experimentală. Pentru îmbunătățirea rezultatelor am elaborat un nou model, cel numeric.

Pentru a compara cele două modele, calculele în al doilea model au fost efectuate pentru aceleași proiectili, unghiuri de emisie și viteza electronilor.

Așa cum se observă și în Fig. 2.10(a) calculele numerice dau rezultate mai bune pentru secțiunea eficace mai ales la energii mici ale electronilor. Despre efectele de interferență (Fig. 2.10(b)) putem spune, că apar oscilații, dar faza și perioada diferă de cele experimentale. Cauza acestei diferențe poate fi caracterul mono-centric a funcției de undă finale a electronului.

În concluzie putem afirma că modelele noastre teoretice dau o descriere bună pentru secțiunile eficace, efectele de interferență și dependența acestora de orientarea axei moleculare.

3. Fotoionizarea moleculei de hidrogen

3.1 Fotoionizarea în aproximația undei plane

Pentru a obține o formulă simplă pentru descrierea interferenței, electronul emis este descris prin unde plane. Analizăm rezultatele în cele două etaloane a operatorului diporal, cel de viteză și de lungime.

Secțiunea eficace de fotoionizare pentru o radiație liniar polarizată poate fi exprimată ca

$$\sigma_{fi} = \frac{4\pi^2}{\omega_{fi}c} |M_{fi}(\omega_{fi})|^2, \quad (3.1)$$

și elementul de matrice în aproximația dipolară este

$$M_{fi}(\omega_{fi}) = \langle f | \epsilon \nabla | i \rangle. \quad (3.2)$$

Pentru a calcula elementul de matrice M_{fi} trebuie să cunoaștem funcția de undă inițială și finală a electronului. Pentru atomul de hidrogen starea finală este descrisă de unde plane. Molecula de hidrogen este descrisă prin formalismul orbitalilor moleculari. Starea inițială este descrisă prin combinația lineară a doi orbitali atomici de tip $1s$ iar starea finală prin unde plane.

Folosirea undelor plane facilitează efectuare analitică a calculelor, funcții de undă mai precise necesită calcule numerice. Rezultatele obținute cu unde plane ne dau numai o descriere calitativă a efectelor de interferență.

Pentru obținerea secțiunii eficace trebuie să calculăm mai întâi elementul de matrice.

3.1.1 Calculele în etalonul de viteză

În etalonul de viteză elementul de matrice în aproximația dipolară este

$$M_{fi} = ik^{1/2} \epsilon \langle f | \nabla_r | i \rangle, \quad (3.3)$$

unde factorul $k^{1/2}$ apare deoarece funcția de undă este normată pe impuls. Pentru verificarea efectului de interferență trebuie să calculăm raportul secțiunilor eficace $\sigma(H_2)/2\sigma(H)$, deci trebuie să calculăm secțiunile eficace pentru atomul și pentru molecula de hidrogen.

Atomul de hidrogen

Introducem funcțiile de undă inițiale și finale în elementul de matrice (3.3) și introducând elementul de matrice în (3.1) pentru secțiunea eficace avem

$$\sigma_{fi} = \frac{32}{\omega_{fi} c} \frac{\alpha^5 k^3}{(\alpha^2 + k^2)^4} \cos^2 \theta_\epsilon \quad (3.4)$$

unde $\cos \theta_\epsilon = \hat{\epsilon} \mathbf{k}$.

Molecula de hidrogen

Pentru molecula de hidrogen elementul de matrice trebuie mediat după toate orientările axei moleculare și astfel introdus în (3.1). Secțiunea eficace pentru fotoionizarea moleculei de hidrogen în etalonul de viteză este

$$\sigma_{fi} = \frac{64}{\omega_{fi} c (1 + S)} \frac{\alpha^5 k^3}{(\alpha^2 + k^2)^4} \cos^2 \theta_\epsilon \left[1 + \frac{\sin(kD)}{kD} \right]. \quad (3.5)$$

Forma $\sigma_{fi} \propto (\hat{\epsilon} \mathbf{k})^2 [1 + \frac{\sin(kD)}{kD}]$ pentru fotoionizarea moleculei de hidrogen în etalonul de viteză a fost prezis prima oară de către Cohen și Fano [5].

3.1.2 Calculele în etalonul de lungime

În aproximația dipolară elementul de matrice în etalonul de lungime este

$$M_{fi} = -k^{1/2} \omega_{fi} \epsilon \langle f | \mathbf{r} | i \rangle. \quad (3.6)$$

Procedura de calcul este aceeași ca și în cazul etalonului de viteză.

Atomul de hidrogen

$$\sigma_{fi} = \frac{512 \omega_{fi}}{c} \frac{\alpha^5 k^3}{(\alpha^2 + k^2)^6} \cos^2 \theta_\epsilon \quad (3.7)$$

unde $\cos \theta_\epsilon = \hat{\epsilon} \hat{\mathbf{k}}$.

Molecula de hidrogen

$$\begin{aligned} \sigma_{fi} = & \frac{1024 \omega_{fi}}{c(1+S)} \frac{\alpha^5 k^3}{(\alpha^2 + k^2)^6} \cos^2 \theta_\epsilon \left[1 + \frac{\sin(kD)}{kD} \right] + \\ & + \frac{16 \omega_{fi}}{c(1+S)} \frac{\alpha^5 k}{(\alpha^2 + k^2)^4} \left[\frac{D^3}{3} - D^2 \cos^2 \theta_\epsilon \frac{\sin(kD)}{kD} + \right. \\ & \left. + \frac{1}{k^2} (1 - 3 \cos^2 \theta_\epsilon) \left(\cos(kD) - \frac{\sin(kD)}{kD} \right) \right] + \\ & + \frac{256 \omega_{fi}}{c(1+S)} \frac{\alpha^5 k}{(\alpha^2 + k^2)^5} \cos^2 \theta_\epsilon \left[\frac{\sin(kD)}{kD} - \cos(kD) \right]. \quad (3.8) \end{aligned}$$

3.2 Rezultate și discuții

Atomul de hidrogen

Luând în considerare că pentru atomul cu un singur electron $\omega = \frac{k^2}{2} + \frac{\alpha^2}{2}$, putem observa că secțiunea eficace în etalonul de lungime este de 4 ori mai mare decât în etalonul de viteză. Comportamentul asimptotic pentru energii mari ale fotonilor este de forma $\sigma \propto \omega^{-7/2}$, corectă în ambele etaloane. Comparând

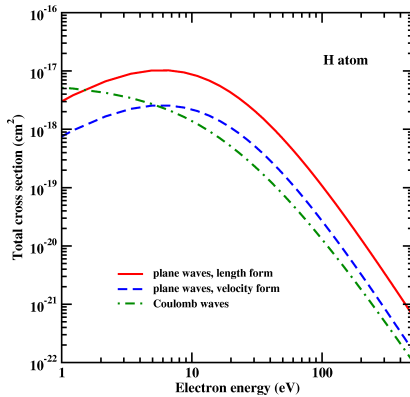


Figura 3.1: Secțiunea eficace totală de fotoionizare a atomului de hidrogen în funcție de energia electronului. Rezultatele exacte (folosind unde Coulombiene) sunt comparate cu cele obținute prin aproximația de unde plane în două diferite etaloane.

cu rezultatele Coulombiene exacte [44] putem afirma, că aproximația de unde plane ne dă rezultate corecte pentru energii mari ale fotonilor în etalonul de viteză (vezi Fig. 3.1).

Molecula de hidrogen

Studiind secțiunile eficace în etalonul de lungime (3.8) și de viteză (3.5) observăm că diferă nu numai în mărime dar și în dependența de unghiul de emisie a electronului și prin orientarea axei moleculare. În etalonul de viteză pentru molecule avem aceeași dependență $\cos^2 \theta_\epsilon$ ca și pentru atomi, în etalonul de lungime obținem o dependență mult mai complicată, emisia de electroni apare și în direcția perpendiculară $\theta_\epsilon=90^\circ$.

Figurile 3.2, 3.3 prezintă secțiunile eficace pentru fotoionizarea moleculei de hidrogen pentru diferite energii ale fotonului și orientare fixă al moleculei, normat la valoarea maximă. Rezultatele pentru secțiunea eficace în ambele etaloane sunt comparate cu rezultatele teoretice ale lui Semenov și Cherepkov [36] și datele experimentale existente [45].

În Fig. 3.2 este reprezentată secțiunea eficace pentru orientarea paralelă

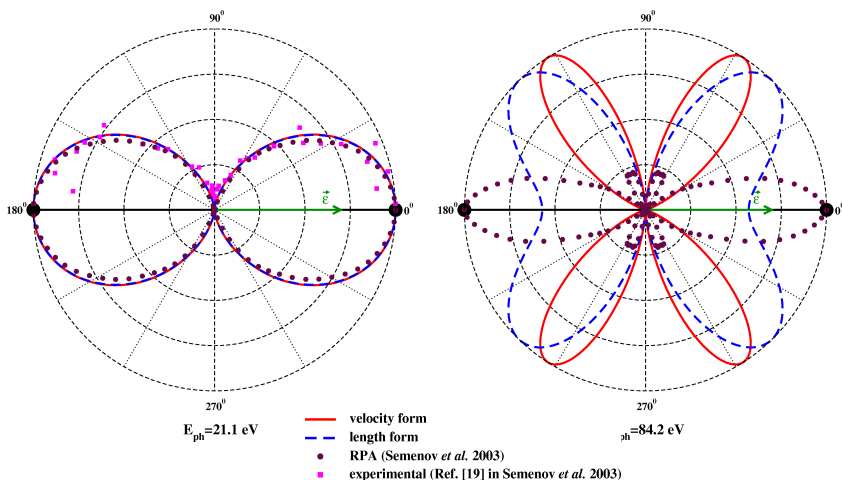


Figura 3.2: Reprezentarea polară a secțiunii eficace de fotoionizare pentru axa moleculară paralelă cu vectorul de polarizare pentru diferite energii ale fotonilor împreună cu rezultatele teoretice ale lui Semenov și Cherepov [36] și datele experimentale [45].

a axei moleculare cu vectorul de polarizare ϵ . Pentru energii mici ale fotonilor rezultatele sunt în bună concordanță, distribuția este una dipolară din cauza factorului $\cos^2 \theta_\epsilon$. Diferențele apar la energii mai mari și la 84.2 eV sunt deja esențiale. La această energie probabilitatea de a emite un electron în direcția vectorului de polarizare în etalonul de viteză devine foarte mică întrucât $\cos(kD/2)$ este aproape 0 (este exact zero la 82 eV). Forma graficii în etalonul de lungime este diferită, nu se reduce la valoarea 0 pentru unghiul de emisie de 0° , iar deosebirea de rezultatele lui Semenov și Cherepov [36] este totală.

Dacă axa moleculară este perpendiculară pe vectorul de polarizare, rezultatele ambelor etaloane și cele ale lui Semenov și Cherepov sunt în perfectă concordanță (Fig. 3.3).

Diferența dintre rezultatele celor două etaloane poate fi evidențiată prin parametrul de asimetrie β , care caracterizează distribuția unghiulară. În etalonul de viteză acest parametru este 2, ca și la atom, iar în etalonul de

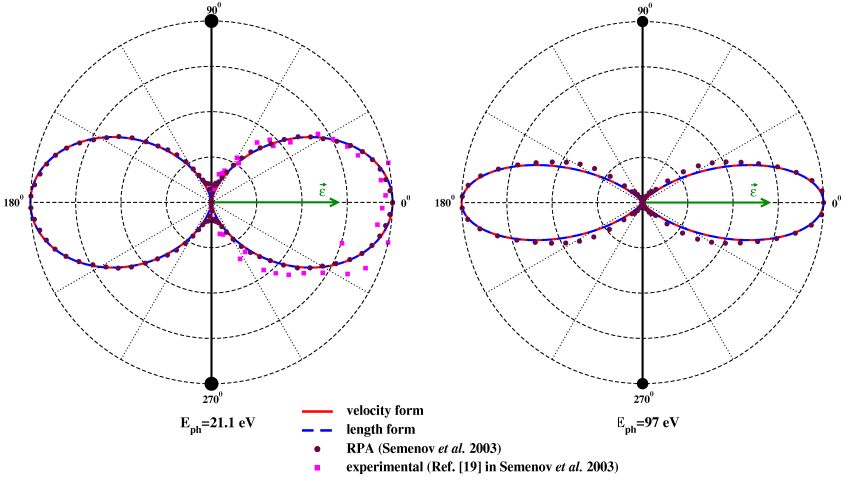


Figura 3.3: La fel ca și Fig. 3.2, dar pentru 90° între axa moleculară și vectorul de polarizare.

lungime este mai complicat de calculat, și are valoarea mai mică decât 2.

În Fig. 3.4 am reprezentat parametrul de asimetrie în diferite etaloane împreună cu rezultatele teoretice ale lui Cacelli *et al.* [33], datele experimentale ale lui Marr *et al.* [47] și Southworth *et al.* [46]. Rezultatele noastre în etalonul de viteză este 2, iar în etalonul de lungime este mai mic și scade cu creșterea energiei fotonilor. Acest comportament este similar cu rezultatele obținute de Cacelli *et al.* [33]. Rezultatele etalonului de lungime sunt mai aproape de cele experimentale decât cele ale etalonului de viteză.

Pentru evidențierea efectului de interferență am reprezentat în Fig. 3.5 raportul $\sigma(\text{H}_2)/2\sigma(\text{H})$. Rezultatele noastre teoretice sunt prezentate alături de datele experimentale ale lui Samson și Haddad [30], împărțit cu secțiunea eficace totală a fotoionizării atomului de hidrogen, pentru același potențial de ionizare pentru moleculă și pentru atom. În ambele etaloane electronul emis este descris prin unde plane. În acest caz unghiul de emisie θ_k este în legătură cu direcția proiectilului $\theta_k = \frac{\pi}{2} - \theta_\epsilon$. Putem observa din (3.5) că în etalonul

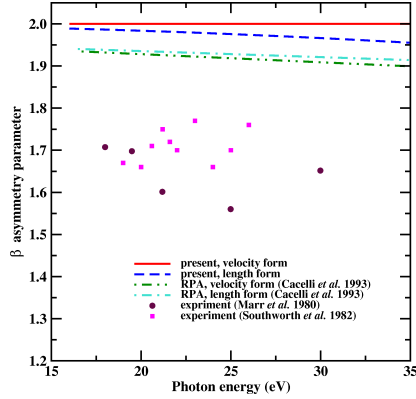


Figura 3.4: Parametrul de asimetrie β pentru fotoionizarea moleculei de hidrogen în funcție de energia fotonului. Rezultatele noastre sunt prezentate împreună cu rezultatele teoretice ale lui Cacelli *et al.* [33], datele experimentale ale lui Marr *et al.* [47] și Southworth *et al.* [46]

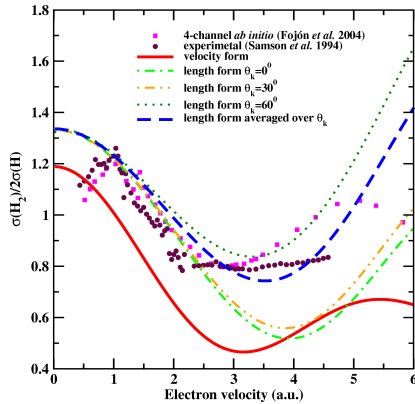


Figura 3.5: Raportul $\sigma(\text{H}_2)/2\sigma(\text{H})$ în funcție de viteza electronului emis. În etalonul de lungime raporturile sunt prezentate pentru diferite unghiuri θ_k , dar și mediate după ele.

de viteză secțiunea eficace diferențială are aceeași distribuție ca și în cazul atomului, iar în etalonul de lungime raportul este dependent de unghiul de emisie a electronului.

În calculele lor teoretice Semenov și Cherepkov [36] au numit minimul de la 80 eV "Cooper-like". Au afirmat că acest minim este în relație cu forma nesferică a potențialului molecular. Aceasta este adevărat, dar noi mai adăugăm, că acest minim este cauzat de interferența undelor electronului emis. Studii recente [39] au arătat că pentru molecule homonucleare minimul Cooper și minimul interferenței apare la același viteză a electronului.

În etalonul de lungime secțiunea eficace nu scade la 0, dar minimul există. Integărând după toate unghiurile de emisie observăm că rezultatele etalonului de lungime sunt în bună concordanță cu datele experimentale (Fig. 3.5).

3.3 Concluzii

Am studiat efectele de interferență și în cazul fotoionizării moleculei de hidrogen. Rezultatele au fost publicate în *Phys. Lett. A* [38]. Starea finală a electronului activ este descrisă prin unde plane, astfel calculele efectuate în diferite etaloane conduc la rezultate diferite privind valoarea secțiunii eficace și distribuția unghiulară a electronilor. Etalonul de viteză dă rezultate mai bune pentru valoarea secțiunii eficace, iar pentru distribuția unghiulară a electronilor etalonul de lungime conduce la rezultate mai interesante și de încredere. Mediind după toate orientările moleculei în etalonul de viteză, obținem același dependență $\cos^2 \theta_e$ ca și pentru atomi [2], iar etalonul de lungime prezintă o dependență unghiulară mult mai complicată. În ultimul caz apare emisia de electroni și în direcția perpendiculară pe vectorul de polarizare, ca și în cazul funcțiilor de undă mai precise [2].

Ca și în cazul anterior, pentru ionizarea cu ioni rapizi [17] am studiat raportul $\sigma(H_2)/2\sigma(H)$ în funcție de viteza electronului emis. Minimele și maximele obținute sunt dovezi clare a interferenței. În etalonul de viteză aceste oscilații nu depind de unghiul de emisie a electronului. În etalonul de lungime s-a

observat dependența de unghiul de emisie, din cauza dependenței unghiulare diferite pentru atom și moleculă. Integrând după aceste unghiuri rezultatele etalonului de lungime sunt în bună concordanță cu cele experimentale [30,37].

4. Concluzii finale

Teza tratează efectele de interferență observate în raportul secțiunilor eficiente diferențiale a moleculei de hidrogen și a doi atomi de hidrogen, în funcție de viteza electronului, pentru diferite unghiuri de emisie în cazul ionizării prin impact cu ioni și fotoni. Apariția efectului de interferență este cauzată de caracterul bi-centric al moleculei de hidrogen.

Calculul se bazează pe aproximația semiclassicală, unde traiectoria proiectilului este tratat clasic, iar electronii din molecula țintă sunt descrise cuantic. Interacțiunea dintre proiectil și electron este considerată perturbativă. Am calculat secțiunea eficace diferențială pentru ionizarea moleculei cu ioni și fotoni.

În cazul ionizării moleculei de hidrogen prin ioni rapizi am elaborat două modele. În primul model starea finală a electronului este descrisă prin unde plane, astfel calculele pot fi efectuate analitic. În al doilea model starea finală este descrisă prin unde Coulombiene, astfel calculele necesită rezolvări numerice. Rezultatele obținute prin cele două modele au fost comparate cu datele experimentale.

Analizând rezultatele pentru secțiunea eficace diferențială putem afirma, că obținem date mai bune cu cel de al doilea model, mai ales la energii mici ale electronului ejectat.

În cazul efectului de interferență observăm că am obținut rezultate bune cu primul model, care prezice și dependența unghiulară a oscilațiilor de interferență, dovedite ulterior experimental. Oscilațiile sunt cele mai accentuate în cazul orientării paralele a moleculei cu traiectoria proiectilului, și pentru $k_{\parallel} = q$ este

întotdeauna constructivă.

Pe lângă ionizarea moleculei de hidrogen prin ioni rapizi am mai studiat și fotonizarea [38]. În acest caz starea finală a electronului emis este descrisă prin unde plane.

Calculule au fost efectuate în diferite etaloane (de viteză și de lungime) iar rezultatele obținute sunt diferite în funcție de etalonul folosit. Pentru valoarea secțiunii eficace etalonul de viteză dă rezultate mai bune, iar etalonul de lungime descrie mai bine distribuția unghiulară a electronilor. În etalonul de lungime este posibilă și emisia de electroni perpendicular pe vectorul de polarizare, ca și în cazul folosirii funcțiilor de undă mai precise.

Analizând efectul de interferență observăm că în etalonul de viteză oscilațiile sunt independente de unghiul de emisie a electronului, iar în etalonul de lungime apare acesată dependență. Oscilațiile sunt prezente și după ce se mediază după toate unghiurile de emisie posibile și sunt în bună concordanță cu datele experimentale.

În teză am studiat ionizarea moleculei de hidrogen prin particule încărcate și fotoionizare, elaborând diferite modele. Obiectivul urmărit era investigarea efectelor de interferență, observate în spectrul electronului emis, interferență cauzată de caracterul bi-centric a moleculei de hidrogen. Modelele elaborate au evidențiat acest efect și rezultatele obținute sunt în bună concordanță cu datele experimentale și alte rezultate teoretice.

Bibliografie

- [1] Corchs S.E. and Rivarola R.D., *Phys. Scr.* **50** (1994) 469
- [2] Walter M. and Briggs J., *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **32** (1999) 2487
- [3] T.F. Tuan, *Phys. Rev.* **117** (1960) 756
- [4] S.E. Corchs, H.F. Busnengo and R.D. Rivarola, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **149** (1999) 247
- [5] H.D. Cohen and U. Fano, *Phys. Rev.* **150** (1966) 30
- [6] N. Stolterfoht, B. Sulik, V. Hoffmann, B. Skogvall, J.Y. Chesnel, J.Rangama, F. Frémont, D. Hennecart, A. Cassimi, X. Husson, A.L. Landers, J.A. Tanis, M.E. Galassi and R.D. Rivarola, *Phys. Rev. Lett.* **87** (2001) 023201
- [7] N. Stolterfoht, B. Sulik, L. Gulyás, B. Skogvall, J.Y. Chesnel, F. Frémont, D. Hennecart, A. Cassimi, L. Adoui, S. Hossain, J.A. Tanis, *Phys. Rev. A* **67** (2003) 030702
- [8] S. Hossain, A.S. Alnaser, A.L. Landers, D.J. Pole, H. Knutson, A. Robinson, B. Stamper, N. Stolterfoht, and J.A. Tanis, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **205** (2003) 484
- [9] S. Hossain, A. L. Landers, N. Stolterfoht, and J. A. Tanis, *Phys. Rev. A* **72** (2005) 010701
- [10] Deepankar Misra, U. Kadhane, Y.P. Singh, L.C. Tribedi, P.D. Fainstein and P. Richard, *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004) 153201
- [11] Deepankar Misra, A. Kelkar, U. Kadhane, Ajay Kumar, Lokesh C. Tribedi, and P. D. Fainstein, *Phys. Rev. A* **74** (2006) 060701

-
- [12] Misra D. et al, *Rad. Phys. Chem.* **75** (2006) 1723–1726
- [13] Deepankar Misra, A. Kelkar, U. Kadhane, Ajay Kumar, Y. P. Singh, and Lokesh C. Tribedi, P. D. Fainstein, *Phys. Rev. A* **75** (2007) 052712
- [14] Deepankar Misra, Aditya H. Kelkar, Shyamal Chatterjee and Lokesh C. Tribedi, *Phys. Rev. A* **80** (2009) 062701
- [15] M.E. Galassi, R.D. Rivarola, P.D. Fainstein, N. Stolterfoht, *Phys. Rev. A* **66** (2002) 052705
- [16] G. Laurent, P.D. Fainstein, M.E. Galassi, R.D. Rivarola, L. Adoui and A. Cassimi, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **35** (2002) L495
- [17] L. Nagy, L. Kocbach, **K. Póra** and J.P. Hansen, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **35** (2002) L453–L459
- [18] **K. Póra**, L. Nagy, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **233** (2005) 293–297
- [19] L. Nagy, S. Borbély and **K. Póra**, *Braz. J. Phys.* **36** (2006) 511–514
- [20] L. Sarkadi, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **36** (2003) 2153–2163
- [21] C.R. Stia, O. A. Fojón, P.F. Weck, J. Hanssen and R.D. Rivarola, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **36** (2003) L257
- [22] Tanis J.A. and Hossain S., *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **261**(2007) 226–229
- [23] **Póra Katalin**, Nagy László, *Műszaki Szemle, Fizika szám* **41** (2008) 18–23
- [24] S. Borbély, **K. Póra** and L. Nagy, *J. Phys: Conf. Series* **163** (2009) 012067
- [25] **K. Póra**, L. Nagy, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **267** (2009) 370–372
- [26] F. Járαι-Szabó, **K. Nagy-Póra**, L. Nagy, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **42** (2009) 245203
- [27] C. Backx, G.R. Wight and M.J. Van der Wiel, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **9** (1976) 315

-
- [28] J.A.R. Samson, *Phys. Rep.* **28** (1976) 303
- [29] L.C. Lee, R.W. Carlson and D.L. Judge, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **16** (1976) 873
- [30] J.A.R. Samson and G.N. Haddad, *J. Opt. Soc. Am. B* **11** (1994) 277
- [31] M.R. Flannery and U. Öpik, *Proc. Phys. Soc. (London)* **86** (1965) 491
- [32] S.P. Khare, *Phys. Rev.* **173** (1968) 43
- [33] I. Cacelli, R. Moccia and A. Rizzo, *J. Chem. Phys.* **98** (1993) 8742
- [34] M. Yan, H.R. Sadeghpour and A. Dalgrano, *Astrophys. J.* **496** (1998) 1044
- [35] F. Martín, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **32** (1999) R197
- [36] S.K. Semenov and N.A. Cherepkov, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **36** (2003) 1409
- [37] O.A. Fojón, J. Fernandez, A. Palacios, R. D. Rivarola and F. Martin, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **37** (2004) 3035
- [38] L. Nagy, S. Borbély, **K. Póra**, *Phys. Lett. A* **327** (2004) 481
- [39] R. Della Picca, P.D. Fainstein, M.L. Martiarena, N. Sisourat and A. Dubois, *Phys. Rev. A* **79** (2009) 032702
- [40] S.P. Lucey, J. Rasch, C.T. Whelan, H.R.J. Walters, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **31** (1998) 1237
- [41] L. Nagy and L. Végh, *Phys. Rev. A* **46** (1992) 284–289
- [42] J.P. Hansen and L. Kocbach, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **22** (1989) L71–L77
- [43] Nicolas Sisourat, Jérémie Caillat, Alain Dubois and Pablo D. Fainstein, *Phys. Rev. A* **76** (2007) 012718
- [44] H. Hall, *Rev. Mod. Phys.* **8** (1936) 358
- [45] Y. Hirosika, J.H.D. Eland, *private communication*, cited in [36]
- [46] S. Southworth, W.D. Brewer, C.M. Truesdale, P.H. Kobrin, D.W. Lindle, D.A. Shirley, *J. Electron Spectrosc. Rel. Phenomena* **26** (1982) 43
- [47] G.V. Marr, R.H. holmes, K. Kodling, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **13** (1980) 283